(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2002 年12 月27 日 (27.12.2002)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 02/103829 A1

(OGAMI, Yasuji) [JP/JP]: 〒240-0044 神奈川県横浜市

保土ヶ谷区仏向町1425-11 Kanagawa (JP). 大間敦史 (OOMA, Atsushi) [JP/JP]; 〒232-0061 神奈川県横浜市

南区大岡1丁目43-20 Kanagawa (JP). 狩野昭雄 (KANO, Akio) [JP/JP]; 〒230-0074 神奈川県横浜市鶴見区北寺

尾2丁目8-20 東芝別所アパート4-417 Kanagawa (JP). 宗内篤夫 (SONAI, Atsuo) [JP/JP]; 〒246-0025 神奈川

県横浜市瀬谷区阿久和西2丁目50-8 Kanagawa (JP). 堀 美知郎 (HORI, Michio) [JP/JP]; 〒236-0021 神奈川県

(51) 国際特許分類7:

H01M 8/04, 8/02

(21) 国際出願番号:

PCT/JP01/05152

(22) 国際出願日:

2001年6月15日(15.06.2001)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会 社 東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒 105-8001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 鈴江武彦,外(SUZUYE, Takehiko et al.) ; 〒 100-0013 東京都千代田区霞が関3丁目7番2号 鈴榮特

横浜市金沢区泥亀1丁目28 F-202 Kanagawa (JP).

許綜合法律事務所内 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

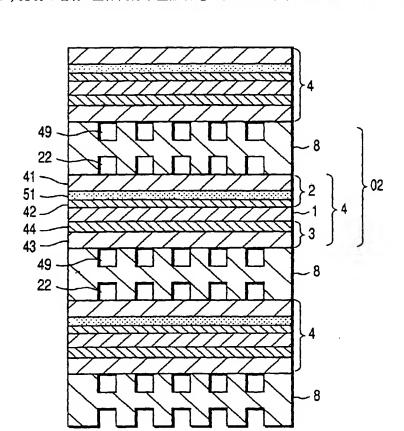
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 小上泰司

(81) 指定国 (国内): CN, DE, JP, US.

[続葉有]

(54) Title: SOLID POLYMER TYPE FUEL CELL, AND SOLID POLYMER TYPE FUEL CELL GENERATION SYSTEM

(54) 発明の名称: 固体高分子型燃料電池および固体高分子型燃料電池発電システム



(57) Abstract: A solid polymer type fuel cell and a solid polymer type fuel cell system, which are made simple, compact and light weight. These fuel cell and system comprise: a plurality of reactive gas supply separators (8) arranged on at least one of the mutually opposing face of each unit cell (4) and the non-opposing face of the unit cell(4) and including a fuel gas supply passage such as a groove (22) and an oxidizer gas supply passage such as a groove (49) disposed on the opposing faces; a conductive, porous and water-repellent layer (51) interposed between at least a catalyzer layer (42) and the groove (22); water supply means or the groove (22) for supplying liquid water to an introduction portion (23) of a fuel gas; and means (31) for controlling the flow of the water to be supplied to the fuel gas introduction portion (23).

 添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

固体高分子型燃料電池および固体高分子型燃料電池システムの簡素化、コンパクト化/軽量化を図るために次のようにした。各単位電池(4)相互の対向する面並びに該単位電池(4)の反対向面の少なくとも一方に配設し、各々が対向する面に燃料ガス供給路例えば溝(22)と酸化剤ガス供給路例えば溝(49)をそれぞれ設けた複数の反応ガス供給セパレータ(8)と、少なくとも触媒層(42)と溝(22)の間に設けた導電性多孔質性の撥水層(51)と、溝(22)であって燃料ガスの導入部(23)に液状の水を供給する水供給手段と、燃料ガス導入部(23)に供給する水量制御手段(31)を備えたもの。

1

明細書

固体高分子型燃料電池および固体高分子型燃料電池発電システム

技術分野

本発明は、固体高分子膜を電解質として用いた固体高分子型燃料電池および固体高分子型燃料電池発電システムに関する。

背景技術

燃料電池は水素等の燃料ガスと空気等の酸化剤ガスを電気化学的に反応させることにより、燃料ガスのもつ化学的エネルギーを電気エネルギーに変換するものである。

 るガス不透過性の酸化剤ガス供給セパレータ 6 を当接したも のである。

燃料極2に水素を主成分する燃料ガスを、酸化剤極3に空気などの酸化剤ガスをそれぞれ供給すると単位電池4の一対の電極で下記の電気化学反応が進行し、電極2,3間で起電力が生じる。

燃料極 2 : 2 H $_2$ \rightarrow 4 H $^+$ + 4 e $^-$

酸化剂極3:O₂+4H⁺+4e⁻→2H₂O
(3)式

燃料極2の触媒層42では(2)式に示すように供給した水素は水素イオンと電子に解離する。水素イオンは固体高分子膜1を通って、電子は外部回路を通って酸化剤極3にそれぞれ移動する。

一方、酸化剤極3の触媒層44では(3)式に示すように供給した酸化剤ガス中の酸素と上記の水素イオンおよび電子が反応して水を生成する。このとき、外部回路を通った電子は電流となり電力を供給することができる。

なお、(2)式、(3)式の反応により生成した水は電池で消費されなかったガス(既反応ガス)と共に電池外に排出され、さらに(3)式の反応は発熱反応であることから、燃料電池の発電に伴い燃料電池本体11は発熱する。

このため通常、冷却水供給セパレータ7に冷却水を流通するか、後に示す酸化剤極3での水の蒸発を利用した潜熱冷却方式により燃料電池本体11の冷却を行っている。

ところで、前述の固体高分子膜1としてイオン導電性のパーフルオロカーボンスルホン酸(ナフィオンR:米国、デュポン社)等で知られているが、この固体高分子膜1は分子中に水素イオンの交換基を持ち、飽和含水することによりイオン導電性電解質として機能し、逆に膜の含水量が少なくなるとイオン抵抗が高くなり電解質の機能が低下する特徴がある。このため、固体高分子型燃料電池において、高い電池性能を得るためには固体高分子膜1を常に飽和含水としておくことが必要となる。

次に、従来の固体高分子型燃料電池発電システムについて、 図13の系統図を参照して説明するが、図13は流体制御用 のバルブ、温度や圧力の測定機器は省略している。

以下にシステムの構成を説明する。発電のための燃料として、メタノール等の炭化水素を使用する場合は、改質器10にて炭化水素と水蒸気を反応させ水素を主成分とする燃料ガスに変換する必要がある。改質された燃料ガスは燃料電池本体11に供給され水素が電池反応により消費される。消費されなかった水素、CO2等の不活性ガスおよび水蒸気は燃料電池本体11から既反応ガスとして排出される。

既反応ガスは電池出口で冷却器15により冷却され水分を 回収された後に改質器10にて燃焼する。なお、燃料として 純水素を使用する場合は直接燃料電池に供給できるため、改 質器10は不要となりシステムは比較的簡素化する。

酸化剤としては通常、空気を例えばブロア14により昇圧し、燃料電池本体11に供給する。燃料電池本体11に供給

する空気は予め加湿が必要となるため、酸化剤ガス供給ラインには加湿器12を設けている。

燃料電池本体11内で酸素が消費された残りの既反応ガス、生成水、燃料極側から移動した水蒸気は既反応ガスとして燃料電池本体11外へ排出される。既反応ガスは電池出口において冷却器15により冷却され、ドレインポット16により水分を回収された後大気に放出される。

一方、燃料電池本体11は発電に伴い反応熱を生成するため、水供給システム13からの冷却水を、冷却板17と加湿器12を順次介して水供給システム13に循環することにより燃料電池本体11を冷却している。既反応ガスおよび冷却水で回収した熱は温水として給湯できる。

また、固体高分子型燃料電池発電システムでは水の自立が 必要不可欠であることから、上記のシステムでは燃料電池本 体11から排出される既反応ガスに含まれる水分を回収して、 燃料改質、空気加湿、燃料電池本体の冷却にそれぞれ使用し ている。

これまでの従来の技術では以下のような課題があった。

(イ)燃料電池本体に供給する反応ガスを予め加湿するシステムでは、反応ガスを加湿するために燃料電池の既反応ガスから回収した水を使用するが、加湿器12にて多量の水を反応ガス中に蒸発させる必要があり、その分の熱量(蒸発潜熱)を水に与えなければならず、大きな加湿器12が必要となる。このことが、発電システムのコンパクト化、軽量化の妨げとなっていた。

(ロ)燃料電池本体11の動作温度を冷却水の循環により制御するシステムでは、多量の冷却水を循環し温度制御するための大きな水供給システム13(ポンプ、ドレインポット、制御装置等)が必要となる。また、燃料電池本体11の構成部材として発電に寄与しない冷却水供給セパレータ7が必要となるため燃料電池本体が大きくなる。これらのことが、発電システムのコンパクト化/軽量化および低コスト化の妨げとなっていた。

そこで、本発明の第1の目的は、反応ガスを予め加湿しないでも固体高分子膜の乾燥を防止でき、しかも冷却水循環システムを必要とせず高負荷時や大きな負荷変動時においても安定した発電が可能となる固体高分子型燃料電池を提供することである。

本発明の第2の目的は、複数の単位電池を積層してなる燃料電池において、各単位電池に水を均等に供給する安価な固体高分子型燃料電池を提供することである。

本発明の第3の目的は、負荷変動に対して安定した発電が可能な固体高分子型燃料電池システムを提供することである。発明の開示

第1の局面に対応する発明は、固体高分子型燃料電池において、

固体高分子膜の両面に触媒層を有する燃料極と触媒層を有する酸化剤極をそれぞれ配置した複数の単位電池と、

前記各単位電池の前記燃料極に燃料ガスを供給するための燃料ガス供給路を設けた反応ガス供給セパレータと、

前記燃料極の触媒層と前記反応ガス供給セパレータの間に設けた導電性多孔質性の撥水層と、

前記燃料ガス供給路に液状の水を供給する水供給手段と、を具備した固体高分子型燃料電池である。

第1の局面に対応する発明によれば、燃料ガスと共に供給した水の一部は燃料ガス供給溝で水蒸気となり、燃料極に形成した多孔質体を通過し触媒層に到達する。燃料極の触媒層では燃料ガスの消費に伴い水蒸気は凝集して水となり固体高分子膜を通過して酸化剤極に移動して蒸発する。このことにより、固体高分子膜は常に湿潤状態に維持され、酸化剤ガスの加湿が不要となる。

ここで、燃料極に形成した導電性多孔質性の撥水層は重要な役割を果たす。すなわち、撥水層は水蒸気を容易に通過させるが、液体(液状)としての水の通過を防止することができるため、燃料ガス供給路に過剰の水を供給することにより、酸化剤極で蒸発する十分な水量を供給でき、しかも触媒層の過剰濡れによる電圧低下を防止することができる。このため、負荷変動時には予め供給する水量を多めに設定できることから、大きな負荷変動時でも安定した運転が可能となる。

第2の局面に対応する発明は、固体高分子型燃料電池において、

固体高分子膜の両面に触媒層を有する燃料極と触媒層を有する酸化剤極をそれぞれ配置した複数の単位電池と、

前記各単位電池の前記燃料極に燃料ガスを供給するための燃料ガス供給路を設けた反応ガス供給セパレータと、

前記燃料極の触媒層と前記反応ガス供給セパレータの間に設けた導電性多孔質性の撥水層と、

前記燃料ガス供給路に液状の水を供給することにより、前記固体高分子膜を加湿するとともに前記反応ガス供給セパレータに対して潜熱冷却を行う加湿潜熱冷却手段と、

を具備した固体高分子型燃料電池である。

第2の局面に対応する発明によれば、酸化剤極では燃料極からの移動水と電池反応で生成した反応水が蒸発する。水が蒸発するときに539cal/g程度の蒸発潜熱を吸収するため、酸化剤ガスは電池反応により発生した熱を吸収し、燃料電池本体を潜熱冷却して電池本体外部に排出される。潜熱による冷却能力は燃料電池本体内での水の蒸発量に依存するため、燃料電池本体の温度が高いほど、燃料電池本体の温度と供給する酸化剤ガスの露点温度差が大きいほど、また、酸化剤ガスの利用率が低いほど、水の蒸発量が増し潜熱冷却能力は高くなる。

このため、供給する酸化剤ガスの露点温度および酸化剤ガスの利用率が一定の時である場合、燃料電池本体の温度が低い時に潜熱冷却量は小さく、燃料電池本体の温度が上昇することになる。さらに、燃料電池本体の温度が十分高くなると潜熱冷却量は大きくなり、やがて燃料電池本体の発熱量と潜熱冷却量が釣り合い、燃料電池本体の温度は一定となる。

また、酸化剤ガスの露点温度、負荷電流、反応ガスの利用率、周囲の温度等の運転条件が変化した場合でも、外部からの温度制御をしないでも、発熱量と潜熱冷却量が釣り合うま

で燃料電池本体温度は変化して安定する。このため、電池本体の温度を制御する手段を必要としない。また、水の蒸発潜熱は水の顕熱と比較して非常に大きいこと、電池本体に供給する水の量は極めて少ないことから、供給する水の温度制御も必要としない。

但し、発熱量を潜熱冷却するために必要十分な水量が燃料電池本体に供給されないと、燃料電池本体の温度は異常上昇することになる。このため、発熱量を冷却するために必要な水を供給するための水量の制御手段が重要となる。

以上のことから燃料電池本体を簡素化でき、コンパクト化
/軽量化、低コスト化が可能となる。

上記のことから第2の局面に対応する発明の固体高分子型燃料電池では複数の単位電池を積層してなる燃料電池本体において、各単位電池の燃料極に水を供給することにより、反応ガスを予め加湿しないでも固体高分子膜の乾燥を防止できる心かも大きな冷却水循環システムを発電が可能な燃料電池を電池を提供することができる。また、大きな負荷変動時においてきる。また、大きな負荷変動時で、大きな負荷変動時で、大きな負荷変動時で、大きな負荷変動が生じても発熱量に応じた潜熱冷却ができ、安定した発電が可能な燃料電池発電システムを提供することができる。

第3の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記燃料ガス供給路に供給する水の量を制御する水量制御手段を、さらに具備した第1又は第2の局面

に対応する固体高分子型燃料電池である。

第4の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。」すなわち、前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータを貫通するように形成した水マニホールドと、該反応ガス供給セパレータに設けた燃料ガス供給路の燃料ガス導入部に形成した燃料ガスと水を混合するヘッダと、前記反応ガス供給セパレータであって前記ヘッダと前記水マニホールドをつなぐ水供給路部とで構成した第 1~第3の局面のいずれかに対応する固体高分子型燃料電池である。

第5の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータを貫通するよう

に形成した水マニホールドと、該反応ガス供給セパレータに 設けた燃料ガス供給路の燃料ガス導入部に形成した燃料ガス と水を混合するヘッダと、前記反応ガス供給セパレータであ って前記ヘッダに配設した圧損要素としての多孔質体と、前 記反応ガス供給セパレータであって前記ヘッダと前記水マニ ホールドをつなぐ水供給路部とで構成した第1~第3の局面 に対応する発明の固体高分子型燃料電池本体である。

第5の局面に対応する発明によれば、燃料電池本体の外部から反応ガス供給セパレータを貫通して配置した水マニホールドに供給された水は水供給路を通り、各単位電池の燃料ガス導入部に配置されたヘッダにそれぞれ供給される。ヘッダでは供給された燃料ガスと水が混合され、多孔質体を通過して燃料ガス供給路に配流される。ここで、燃料ガスと水の混合流が多孔質体を通過するときの圧損により、混合流は流れと垂直方向に広がり、均等に燃料ガス供給路に配流される。

第6の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータを貫通するように形成した水マニホールドと、該反応ガス供給セパレータが設けた燃料ガス供給路の燃料ガス導入部に形成した燃料ガスと水を混合するヘッダと、前記反応ガス供給セパレータであって前記ヘッダに配設した圧損要素としての多孔質体と、って前記ヘッダに配設した圧損要素としての多孔質体と、市記反応ガス供給セパレータであって前記ヘッダと前記水マニホールドをつなぐ水供給路部とで構成した第1~第3の局面

のいずれかに対応する固体高分子型燃料電池である。

第6の局面に対応する発明によれば、燃料電池本体の外部から反応ガス供給セパレータを貫通して配置した水マニホールドに供給された水は水供給路に配置した多孔質体を通り、各単位電池の燃料ガス導入部に配置されたヘッダにそれぞれ供給される。ヘッダでは供給された燃料ガスと水が混合され、燃料ガス供給路に配流される。

ここで、水マニホールドから水供給路に配置した多孔質体を通して水をヘッダに供給することにより、ヘッダで水を分散して燃料ガスと均等に混合でき、燃料ガス供給路に混合流を均等に供給することができる。また、多孔質体に水が流通するときに圧損が生じるため、燃料電池本体に積層した単位電池に水を均等に供給することができる。

さらに、多孔質体の気孔径を選定することにより、燃料ガスの圧力が供給水の圧力よりも高くなっても、多孔質体の毛細管力により燃料ガスが供給水側に漏れることを防止できる。

第7の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータを貫通するように形成した水マニホールドと、該反応ガス供給セパレータであって前記燃料ガス供給路が形成されている面に水マーオールドと連通する水供給路と、前記反応ガス供給セパレータであって前記燃料ガス導入部と前記水供給路をつなぐ連通

孔と、で構成した第1~第3の局面のいずれかに対応する発明の固体高分子型燃料電池本体である。

第7の局面に対応する発明によれば、燃料電池本体の外部から反応ガス供給セパレータを貫通して配置した水マニホールドに供給された水は水供給路を通り、各単位電池の燃料ガス導入部に配置された連通孔を通過し燃料ガス導入部にそれぞれ供給される。燃料ガス導入部では供給された燃料ガスと水が混合され、燃料ガス供給路に流通する。

ここで、連通孔を各燃料ガス供給路に設けることにより、 燃料ガス導入部に設けるヘッダを小さくでき、各燃料ガス供 給路に水を均等に供給することができる。

第8の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータを貫通するよりのに形成した水マニホールドと、該反応ガス供給セパレータであって前記燃料ガス供給路が形成されている面に水料ガス供給路が形成されている面に水がス件合路と、前記反応ガス供給セパータであって前記燃料ガス等入部とは反対のであってがあってがある。

第8の局面に対応する発明によれば、第7の局面に対応する発明と同様に燃料ガス導入部に設けるヘッダを小さくでき、

各燃料ガス供給路に水を均等に供給することができる。また、 多孔質体に水が流通するときに圧損が生じるため、燃料電池 本体に積層した単位電池に水を均等に供給することができる。 さらに、多孔質体の気孔径を選定することにより、燃料ガス の圧力が供給水の圧力よりも高くなっても、多孔質体の毛細 管力により燃料ガスが供給水側に漏れることを防止できる。

第9の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記多孔質体の平均気孔径は20μm以下(0を含まず)である第5、第6、第8の局面のいずれかに対応する発明の固体高分子型燃料電池本体である。

第9の局面に対応する発明によれば、多孔質体の平均気孔径を20μm以下とすることにより、多孔質体の気孔に保持された水の毛細管力は5kPa以上となり、5kPa以下の差圧において多孔質体はガスに対してウエットシール効果を発揮する。

ところで、燃料電池本体において、燃料ガス供給路の圧損は小さいほど好ましいが、燃料供給路を燃料が通過する時に通常3kPa程度の圧損が生じる。このため燃料ガス供給圧力はそれ以上に設定する必要がある。よって、水供給系のトラブルにより水の供給圧力がなくなった場合、燃料ガスの圧力が供給水の圧力より3kPa以上大きくなることがある。 多孔質体の平均気孔径を20μm以下とすることにより、上記のようなトラブル発生時でも、燃料ガスが供給水側に漏れ込むことはない。

第10の局面に対応する発明は、固体高分子型燃料電池発

電システムにおいて、

固体高分子膜の両面に触媒層を有する燃料極と触媒層を有する酸化剤極をそれぞれ配置した複数の単位電池と、

前記各単位電池の前記燃料極に燃料ガスを供給するための燃料ガス供給路を設けた反応ガス供給セパレータと、

前記燃料極の触媒層と前記反応ガス供給セパレータの間に設けた導電性多孔質性の撥水層と、

前記燃料ガス供給路に液状の水を供給する水供給手段又は前記燃料ガス供給路に液状の水を供給することにより、前記固体高分子膜を加湿するとともに前記反応ガス供給セパレータに対して潜熱冷却を行う加湿潜熱冷却手段と、

前記単位電池より排出される燃料排ガスおよび酸化剤排ガスからの水の熱を回収する熱回収手段と、

前記熱回収手段で回収された回収水を供給する回収水供給手段と、

前記回収水供給手段からの供給水量を制御する供給水量制御手段と、

を具備したことを特徴とする固体高分子型燃料電池発電システムである。

第10の局面に対応する発明によれば、燃料極に水を供給 して潜熱冷却を行う固体高分子型燃料電池本体より排出され る燃料排ガスおよび酸化剤排ガスの両方から水を回収し、燃 料ガスとともに燃料電池本体の燃料極に供給する。燃料極に 水を供給して潜熱冷却を行う固体高分子型燃料電池本体では、 燃料排ガスに含まれる水量は酸化剤排ガスに含まれる水量と WO 02/103829

同様に多いため、両方の排ガスから水を回収することにより、 必要となる水をシステム内で確保できる。

また、燃料極に供給する水の流量は電池本体の発熱量に依存するため、過少であると十分な潜熱冷却性能が得られないこと、また過剰であると余分な水を供給することで、システム効率を低下させることから、水の供給水量を制御することにより安定した高いシステム効率を維持できる。

また、第10の局面に対応する発明では、次のような効果が得られる。

- (1)酸化剤ガスの加湿器が不要となる。
- (2)水の潜熱による冷却能は水の顕熱による冷却能より高いため、従来の顕熱冷却で必要であった燃料電池本体への冷却水供給量と比較して、極めて少ない量の水供給で足りるため、水回収システム、水供給システムをコンパクト化、軽量化できることから、発電システム全体をコンパクト化・軽量化できる。

第11の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記供給水量を制御する供給水量制御手段は、各単位電池の発電電圧および負荷電流から給水量を演算する演算手段と、前記演算手段の演算結果の信号により回収水の供給水量を制御する定量ポンプとで構成した第10の局面に対応する発明の固体高分子型燃料電池発電システムである。

第11の局面に対応する発明によれば、発電電圧および負荷電流から電池本体の発熱量を計算し、その発熱量を潜熱冷

却できる水量を定量ポンプにより燃料電池本体に供給するようにした。このことから、負荷電流など運転条件が変化しても常に最適量の水を燃料電池本体に供給でき、大きな負荷変動時でも安定した発電が可能となり、常に高いシステム効率を維持することができる。

第12の局面に対応する発明は、次のように構成したものである。すなわち、前記演算手段は、発電電圧V(V/セル)、負荷電流I(A)、積層電池枚数C(セル)、水の蒸発潜熱h(J/g)、電池反応により水蒸気が発生するときの生成エンタルピー変化ΔH(J/mol)、ファラデー定数F(C/mol)としたとき、(1)式に基づき、供給水量W(g/min)を求めるものであり、前記供給水量を制御する手段は該供給水量の20倍量までの任意の水量を制御する手段は該供給水量の20倍量までの任意の水量を前記固体高分子型燃料電池本体に供給制御を行う第9の局面に対応する発明の固体高分子型燃料電池発電システムである。

 $W=30 \cdot I \cdot C \cdot (\Delta H/F-2 V)/h$ (1)式である。

第12の局面に対応する発明によれば、燃料電池本体を潜熱冷却するために必要な供給水量を上記の(4)式により演算できる。(4)式は電池反応により生成した水がすべて水蒸気になるとして発電電圧および負荷電流から計算される発熱量(冷却すべき発熱量)に相当する蒸発潜熱量を有する水量である。上記の式で演算した値以上の水量を燃料電池本体に供給することにより、常に最大の潜熱冷却能力を確保でき、

高負荷時および大きな負荷変動時でも安定した電池特性が得られる。また、演算した量の20倍量以上を供給すると各単位電池の電池電圧にバラツキが生じる。これは過剰の水を供給するとにより、各単位電池に供給する水素ガスの配幅にバラツキが生じるためである。通常の負荷電流変動幅(10%~100%)では供給水を10倍量以上の幅で制御反応により生成した水が、すべて水蒸気になるとして発電量)にはより生成した水が、すべて水蒸量(冷却すべき発熱量を有する水量以上、その20倍量以下の水を燃料電池本体に供給するように制御することに高い、常にあ効率を維持することができる。

なお、上記の(4)式は以下の導入式により導かれる。

導入式:

負荷電流をI(A)とした時に電池1枚に流れる電気量はI(C/sec)である。よって、1分間に流れる電気量は60・I(C/min)となる。ここで、水素1mo1は消費されると2・F(C)の電気量が得られる。但し、F(C/mol)はファラデー常数である。よって、負荷電流をI(A)とした時に電池1枚で消費される水素量は(5)式により計算できる。

$$60 \cdot I / 2F = 30 \cdot I / F$$
 (5)式

よって、積層電池枚数 C (セル) のスタックで消費される水素量 M (mol/min) は、負荷電流 I (A)、積層電

池枚数 C (セル) およびファラデー常数 F (C / m o l) により (6) 式で計算できる。

$$M = 3 \ 0 \cdot I \cdot C / F \qquad (6) \ \exists$$

固体高分子型燃料電池本体で電池反応により生成した水が すべて水蒸気になるとした(7)式の反応における生成エン タルピー変化を Δ H (J / m o 1)とすると、

$$H_{2}$$
 (g) + 1 / 2 O₂ (g) → H_{2} O (g) (7) 式

消費水素の総エネルギー変化U(J/min)は(8)式で計算できる。

$$U = \Delta H \cdot M = 3 \cdot 0 \cdot \Delta H \cdot I \cdot C / F$$
(8) \(\pm \)

電池本体の発熱量Q(J/min)は、消費水素の総エネルギー変化U(J/min)から発電電力を減じた量となることから、単位電池の電池電圧をV(V/セル)とすると、発熱量は(9)式で計算できる。

(9) 式に (8) 式を代入すると、

$$Q = 3 \ 0 \cdot I \cdot C \cdot (\Delta H / F - 2 \cdot V)$$

$$(1 \ 0) \ \exists$$

よって、冷却すべき発熱量は(10)式で計算できる。ここで、供給水の顕熱および供給する反応ガスの顕熱による冷却量は小さいこと、実プラントにおいて燃料電池本体は断熱されており、燃料電池本体表面からの放熱は防止されていることから、上記の発熱量Qに相当する潜熱冷却量を有する水

量を少なくても燃料電池本体に供給する必要がある。

供給水量をW(g/min)、水の蒸発潜熱をh(J/g)と与ると、

 $W = Q / h \qquad (11)$ 式

(11) 式に(10) 式を代入すると、

 $W = 3 \ 0 \cdot I \cdot C \cdot (\Delta H / F - 2 \ V) / h$

ここで、C、Fは定数、 Δ H、 h は温度に依存するが、ほぼ定数と見なすことができる。よって、(1 2)式より、電池本体を潜熱冷却するのに必要な最低供給水量は発電電圧と負荷電流により演算できる。

図面の簡単な説明

図1は本発明の第1の実施形態に係る固体高分子型燃料電池の構成を説明するための断面図。

図2A及び図2Bは図1の実施形態における反応ガス供給セパレータの燃料ガス導入部の構成を説明するための図。

図3は図1の実施形態における固体高分子型燃料電池発電システムを説明するための系統図。

図4は本発明の潜熱冷却のメカニズムを説明するための図。

図 5 は本発明の燃料極への供給水量と電池運転温度および電池電圧の関係を説明するための図。

図6A及び図6Bは図1の実施形態における反応ガス供給セパレータの燃料ガス導入部の構成を説明するための図。

図7A及び図7Bは本発明の第2の実施形態における反

応ガス供給セパレータの燃料ガス導入部の構成を説明するための図。

図8A及び図8Bは本発明の第3の実施形態における反応ガス供給セパレータの燃料ガス導入部の構成を説明するための図。

図9A及び図9Bは本発明の第3の実施形態における反応ガス供給セパレータの燃料ガス導入部の構成を説明するための図。

図10A及び図10Bは本発明の第4の実施形態における反応ガス供給セパレータの燃料ガス導入部の構成を説明するための図。

図11A及び図11Bは本発明の第5の実施形態における反応ガス供給セパレータの燃料ガス導入部の構成を説明するための図。

図12は従来の固体高分子型燃料電池の基本構成の一例を示す概念断面図。

図13は従来の固体高分子型燃料電池発電システムを示す系統図。

発明を実施するための最良の形態

以下、図面を参照して本発明の実施形態を説明する。

<第1の実施形態>

図1は、本発明の固体高分子型燃料電池の第1の実施形態を説明するための概念断面図であり、燃料電池本体11は以下に述べる基本構成02を複数機械的に積重ねて各々を電気

的に直列接続したものである。なお、図1では積層面の間のシール剤、各ガス供給溝に反応ガスを供給するためのガスマニホールド、水供給溝、水マニホールドおよび積層端部の構成は省略している。

各基本構成 0 2 は、イオン導電性を有する固体高分子膜 1 の一方の板面に、サブストレート 4 1 と触媒層 4 2 の間に撥水層を形成する導電性多孔質体 5 1 を設けてなる燃料極(電極) 2 を配設し、固体高分子膜 1 の他方の板面に、サブストレート 4 3 と触媒層 4 4 からなる酸化剤極(電極) 3 を配設(触媒層 4 2、4 3 が固体高分子膜 1 に対向するように当接 1 に対のするように当接され板面に燃料ガスを供給するため燃料ガス供給費 2 2 が形成され、かつ該単位電池 4 を 2 が形成され、かつ該単位電池 4 の酸化剤極 3 のサブスト 4 3 に当接され板面に酸化剤極 3 のサブスを供給するための複数の酸化剤ガス供給費 4 9 が形成された反応ガス供給セパレータ 8 とからなっている。

このような基本構成 0 2 を 5 0 枚積層した燃料電池本体 1 1 を得た。この場合、固体高分子膜 1 として例えばデュポン社のナフィオンを、又サブストレート 4 1 、 4 3 は例えば気孔率 8 0 %のカーボンペーパを使用した。また、燃料極 2 の多孔質体 5 1 は例えばカーボン粉末とポリテトラフルオロエチレンからなるペーストをサブストレート 4 1 に塗布した後、3 6 0 ℃で熱処理することにより得られるものを使用した。触媒層 4 2 、 4 4 は例えばカーボンに白金を 4 0 % 担持した

22

触媒を使用した。反応ガス供給セパレータ8は例えばモール ド加工により溝を成形したカーボン板を使用した。

以上のように構成した第 1 の実施形態の燃料電池では、従来の冷却水供給セパレータ 7 を積層していないため、従来の燃料電池本体と比較して積層高さを 2 5 % 小さくすることができた。

以上述べた第1の実施形態では、燃料極2にしか導電性多 孔質体51を形成しなかったが、同様に酸化剤極3のサブス トレート43と触媒層44の間にも導電性多孔質体を形成し てもよい。

次に、反応ガス供給セパレータ8の構成について図2を参照して説明する。図2Aはセパレータ8の概略を示す上方向に見た断面図である。図2Aに示すようにセパレータ8の一方の板面(上面)の周縁部であって上方側に横方のって力に貫通するように、形成された複数の貫通れからなる水マニホールド20が形成されてリカーのであって側に縦方向である水マニホールド21が形成された複数の貫通孔からなる水マニホールド21が形成され、セパレータ8の一方の板面(上面)の中央部であって燃料ガスマニホールド20に対して所定領域の燃料ガス導入がスマニホールド20に対して所定領域の燃料ガス等であったけ離れた位置から下方に向かう複数の直線状の燃料ガス供給溝22がそれぞれ等間隔に形成されている。

セパレータ8の一方の板面(上面)であって燃料ガス導入部23に水平方向に、水マニホールド21を構成している貫

WO 02/103829

通孔の一つ及び各燃料ガス供給溝22とそれぞれ連通する水供給溝28が形成されている。さらに、セパレータ8の一方の板面(上面)であって燃料ガス導入部23において、水供給溝28と各燃料ガス供給溝22の上端間に、各燃料ガス供給溝22相互の中心に対応して複数の突起25が形成されている。

図2Aに示すようにセパレータ8の一方の板面(上面)であって燃料ガスマニホールド20に隣接して複数の隔壁24が形成されている。この場合、各隔壁24は該マニホールドを構成する貫通孔相互間に位置し、該マニホールド20からの燃料ガスが各燃料ガス供給溝22にそれぞれ例えば最短距離で導かれるようになっている。以上のようなセパレータ8は、例えばモールド加工により製作され、各隔壁24、各突起25、水供給溝28、燃料ガス供給溝22はいずれもモールド加工時に同時に形成される。

以上のように構成されたセパレータ8において、燃料ガス はセパレータ8を貫通して配置した燃料ガスマニホールド2 0から分岐して燃料ガス導入部23に配置したヘッダ26に 供給される。

また、水はセパレータ8を貫通して配置した水マニホールド21から分岐して水供給溝28からヘッダ26に供給される。ヘッダ26に供給された水は、ヘッダ26で燃料ガス中に混合され、この混合ガスは各燃料ガス供給溝22に配流される。

前述した基本構成02を積層した燃料電池本体11では、

燃料ガスおよび水を各セパレータ8にそれぞれ配流した後にヘッダ26で混合され燃料ガス供給溝22に供給していることから、各セパレータ8への燃料ガスおよび水の配流が均一となる。

水供給溝28は燃料ガス供給溝22と同時にモールド加工 (粉体を加圧硬化)しているために、従来のセパレータと同 等の価格で製作が可能である。

図6は、図2の変形例を説明するための図であり、図6 Aはセパレータ8の概略を示す上面図であり、図6 Bは図6 AのA-B線に沿って切断し矢印方向に見た断面図である。この場合、水供給溝28の数を多くし、水マニホールド21に隣接して複数の隔壁29を形成したものである。このように水供給溝28の数を多くし、ヘッダ26の領域を広くすることにより、燃料ガス中への水の分散がより均等となる。

なお、図2及び図6のセパレータ8は、一枚のセパレータ 構成板の対向する面に燃料ガス供給溝22及び酸化剤ガス供 給溝を形成してもよく、又従来の技術と同様に片面に燃料ガ ス供給溝を形成した燃料ガス供給セパレータと、片面に酸化 剤ガス供給溝を形成した酸化剤ガス供給セパレータを背中同 士で張り合わせて製作してもよい。

次に、図1と図2又は図6の構成からなる燃料電池本体を用いた本発明の固体高分子型燃料電池発電システムの実施形態について、図3の系統図を参照して説明する。なお、図3

には流体制御用のバルブ、温度/圧力の測定機器、制御装置は省略している。

図3は、図13の従来の技術で説明した加湿器12と、水供給システム13と、冷却器15と、冷却板17を設けず、新たに以下に述べる熱回収システム30と、演算・制御装置34と、ダイヤフラム式定量ポンプ32と、スタック水供給ライン33を設けたものである。

熱回収システム30は、本発明の水回収手段を構成するもので、例えば燃料電池本体11の燃料極2及び酸化剤極3とドレインポット16の配管経路に設けるものであり、燃料電池本体11から排出される燃料排ガス及び酸化剤排ガスから水の熱を回収するものである。

演算・制御装置34は、本発明の水量制御手段を構成するもので、例えば概略燃料電池本体11の発電電圧及び負荷電流から給水量を演算するものであり、この詳細については後述する。

定量ポンプ32は、ドレインポット16と改質器10をつなぐ改質水供給ライン18並びにドレインポット16と燃料電池本体11の燃料極2をつなぐスタック水供給ライン33の途中に配設され、演算・制御装置34の演算結果の信号により回収水の供給水量を制御するものである。

図1〜図3、図6において、例えば水マニホールド21と、燃料ガス供給溝22と、燃料ガス導入部23と、ヘッダ26と、水供給溝28と、後述する多孔質体50とで、本発明の水供給手段を構成する。

このような構成のものにおいて、燃料としてはメタノールを使用し、改質器10にて水素ガスを主成分とする燃料ガスに改質した後、燃料電池本体11に供給し、又燃料電池本体11から排出された燃料排ガスは熱回収システム30により冷却し水分を回収した後、改質器10で燃焼してから大気に放出するようにしたものである。

一方、酸化剤ガスとして大気中の空気をブロア14にて燃料電池本体11に直接供給した。燃料電池本体11から排出された酸化剤排ガスは熱回収システム30により冷却し水分を回収した後、大気放出とした。燃料排ガスおよび酸化剤排ガスから回収した水は、ドレインポット16に回収し、定量ポンプ32により、燃料電池本体11の燃料極2と改質器10にそれぞれ供給している。

電池本体11の燃料極2に供給する水量は演算・制御装置34により制御した。演算・制御装置34では、測定した燃料電池本体11の発電電圧Vおよび負荷電流Iから(13)式により、最低水供給流量Wを演算し、その2倍量の水を電池本体11に供給するようにダイヤフラムポンプの振動周期を制御している。

 $W = 3 \ 0 \cdot I \cdot C \cdot (\Delta H / F - 2 \ V) / h$ (13) 式

最低水供給水量:W(g/min)、発電電圧:V(V/ セル)、負荷電流:I(A)積層電池枚数:C(セル)、水 の蒸発潜熱:h(J/g)、電池反応により水蒸気が発生す るときの反応生成エンタルピー変化:ΔH(J/mol)、 ファラデー定数:F(C/mol)上記の燃料電池発電システムを常温から起動した。燃料電池本体から負荷電流を取り始めると、燃料電池本体11の温度は徐々に昇温して、負荷電流0.4A/cm²(116A)、燃料利用率70%、空気利用率40%の運転条件では77℃程度で安定した。この時の電池電圧は0.7V/セルであった。

上記の運転条件における最低水供給量Wは、(13)式からは85cc/minとなるので、水供給量は170cc/minであった。同量の発熱量を冷却水の顕熱で冷却する場合、温度差を3℃とすると15281cc/minの冷却水を供給する必要がある。完全潜熱冷却では供給する水は極めて少量であることがわかる。

さらに、供給する空気の露点温度、供給する水の温度、周囲の温度、負荷電流、空気利用率等の運転条件変化に対し、燃料電池本体の温度は74℃~80℃の範囲で変化したが、何れの場合も電池本体は完全に潜熱冷却されており安定して発電することができた。なお、負荷電流が0.1A/cm²(29A)~1A/cm²(290A)の範囲で変動した場合も、供給水量は35cc/min~542cc/minで変動し、電池本体を完全に潜熱冷却することができた。

次に、潜熱冷却のメカニズムについて図4を参照して説明する。燃料ガスと共に供給した水の一部は燃料ガス供給溝22で水蒸気となり、燃料極2に形成した撥水層である導電性多孔質体51を通過し触媒層42に到達する。燃料極2の触媒層42では燃料ガスの消費に伴い水蒸気は凝集して水とな

り、固体高分子膜1を通過して酸化剤極3に移動して蒸発する。

このようなことから、固体高分子膜1は常に湿潤状態(加湿・保湿)に維持され、酸化剤ガスの加湿が不要となる。ここで、燃料極2に形成した多孔質体51は重要な役割を果たしている。すなわち、多孔質体51は水蒸気を容易に通過させるが、液体としての水の通過を防止することができるため、燃料ガス供給溝22に過剰の水を供給することにより、酸化剤極3で蒸発する十分な水量を供給でき、しかも触媒層42、4の過剰漏れによる電圧低下を防止することができる。

なお、実験結果によれば、燃料極2に多孔質体51を形成 しない例にあっては、運転時間経過に伴い電池電圧は徐々に 低下した。これは供給した水により触媒層42,44が過剰 に濡れて分極が大きくなることが原因であると思われる。

一方、酸化剤極3では移動水と電池反応で生成した反応水が蒸発する。水が蒸発するときに539ca1/gの蒸発潜熱を吸収するため、空気は電池反応により発生した熱を吸収し、燃料電池本体11を潜熱冷却して電池本体11外部に排出される。

潜熱による冷却能力は燃料電池本体11内での水の蒸発量に依存するため、燃料電池本体11の温度が高いほど、燃料電池本体11の温度を供給する空気露点温度の差が大きいほど、空気利用率が低いほど、水の蒸発量が増し潜熱冷却能力は高くなる。

このため、供給する空気露点温度および空気利用率が一定

の時である場合、燃料電池本体 1 1 の温度が低い時に潜熱冷却量は小さく、燃料電池本体 1 1 の温度が上昇することでなる。逆に、燃料電池本体 1 1 の温度が十分高くなると潜熱冷却量は大きくなり、やがて燃料電池本体 1 1 の温度は一定となる。また、空気露点温度、負荷電流、反応ガスの利用率、周囲の温度等の運転条件が変化した場合でも、外部からの温度制御をしないでも、発熱量と潜熱冷却量が釣り合うまで燃料電池本体 1 1 の温度は変化して安定する。

次に、燃料極2への供給水量と電池運転温度および電池電圧の関係について、図5を参照して説明する。燃料電池本体11で電池反応により生成した水がすべて水蒸気になるとして発電電圧および負荷電流から計算される発熱量に相当する蒸発潜熱量を有する水量Wを1として燃料極に供給する水の量を横軸に、そのときの電池本体の温度および電池電圧を縦軸にそれぞれ示している。なお、本実施形態の運転条件において最低水供給量Wは85cc/minであった。

図5から明らかなように、供給水量が1倍量以下の場合に電池本体温度は急激に上昇した。これは酸化剤極3での水の蒸発量が少なくなり、潜熱冷却量が減少したためであると考えられる。この時、固体高分子膜1は乾燥傾向となり、電池抵抗が上昇し、電池電圧は急激に低下した。

一方、供給水量が1倍量以上20倍量以下の場合は、電池本体温度はほぼ一定であり、電池電圧も安定している。これは、供給水量が1倍量以上の場合は酸化剤極3の空気の飽和

度が100%に近くなり、十分な潜熱冷却量が得られていることにより、燃料電池本体11は完全に潜熱冷却できていることを示している。

一方、供給水量が20倍量以上となった場合は、電池電圧が急激に低下する傾向が見られた。過剰の供給水が水素の拡散を阻害して、燃料極2側で分極が増大したことが原因と考えられる。よって、燃料電池本体11に供給する水量を、固体高分子型燃料電池本体で電池反応により生成した水がすべて水蒸気になるとして発電電圧および負荷電流から計算される発熱量に相当する蒸発潜熱量を有する水量以上かつその20倍量以下とすることにより、固体高分子膜1を湿潤状態に維持し、また完全に電池本体11を完全に潜熱冷却で、安定した発電出力を得ることができた。

第1の実施形態では燃料電池本体11の燃料極2に既定量の水を供給することにより、従来の技術で必要であった冷却水供給セパレータ7が不要となり、燃料電池本体11を保ち燃料電池本体11を完全に潜熱冷却ができ、大きな負荷変動時においても安定して運転できることを確認した。ここで、完全に潜熱冷却ができることを確認した。ここで、完全に潜熱冷却ができるということは、従来の図12に示すが水供給セパレータ7を何ら使用することなく、潜熱冷却ができることを意味している。

また上記の燃料電池本体11を使用した燃料電池発電システムでは、従来必要であった空気の加湿器15が不要となること、従来の顕熱冷却で必要であった冷却水供給量と比較し

て、極めて少ない量の水供給で足りることから燃料発電シス テムをコンパクト化・軽量化できることが分かった。

<第2の実施形態>

図7は、本発明の第2の実施形態を説明するための図であり、図7Aはセパレータ8の概略を示す上面図であり、図7Bは図7AのA-B線に沿って切断し矢印方向に見た断面図である。図7Aに示すように、反応ガス供給セパレータ8であってヘッダ26に圧損要素(流体均一配列部材)としての多孔質体50を設けたものであり、これ以外の点は図2と同一である。

ここで、多孔質体 5 0 としては、耐食性材料を樹脂で結着 した複合材料、不識布、焼結体、メッシュ等、内部に連通し た気孔を有する材料であればなんでもよい。好ましくは、耐 食性に優れ、比較的安価なカーボン材を用いた方がよい。

この結果、燃料ガスはセパレータ8を貫通して配置した燃料ガスマニホールド20から分岐して燃料ガス導入部23に配置したヘッダ26に供給される。また、水はセパレータ8を貫通して配置した水マニホールド21から分岐して水供給溝28からヘッダ26に供給される。供給した燃料ガスと水はヘッダ26で混合流となり、多孔質体50を通過して燃料ガス供給溝22に配流される。ここで使用する多孔質体50の平均気孔径は500μmの金属焼結体を使用している。

第2の実施形態では、燃料ガスと水の混合流が多孔質体 5 0を通過するときの圧損により、混合流は流れと垂直方向に 広がり、セパレータ面内で均等に燃料ガス供給溝 2 2 に配流 されるようになった。また、燃料電池本体11では負荷電流 密度を1A/cm2とした燃料ガスの流量が多い条件でも、 水と燃料ガスを均等に混合でき、安定した発電ができた。

< 第 3 の 実 施 形 態 >

図8は、本発明の第3の実施形態を説明するための図であり、図8Aはセパレータ8の概略を示す上面図であり、図8Bは図8AのAーB線に沿って切断し矢印方向に見た断面図である。本実施形態は、図8に示すように、概略図6において、反応ガス供給セパレータ8に形成されている各隔壁29をそれぞれ上下方向中央部を切欠き、該各切欠き部並びに隔壁29相互間に、連続するように、図7と同一の圧損要素としての多孔質体50を設けたものであり、これ以外の点は図6と同一である。

このように構成することにより、燃料ガスはセパレータ 8 を貫通して配置した燃料ガスマニホールド 2 0 から分岐して燃料ガス導入部 2 3 に配置したヘッダ 2 6 に供給される。また、水はセパレータ 8 を貫通して配置した水マニホールド 2 1 から分岐して水供給溝 2 8 からヘッダ 2 6 に供給される。供給した燃料ガスと水はヘッダ 2 6 で混合流となり、多孔質体 5 0 を通過して燃料ガス供給溝 2 2 に配流される。

第3の実施形態では、水マニホールド21から水供給溝2 8に配置した多孔質体50を通して水をヘッダ26に供給することにより、ヘッダ26で水の分散が良好となり燃料ガス と均等に混合でき、燃料ガス供給溝22に混合流を均等に供 給することができた。 また、燃料電池本体11では負荷電流密度を1A/ c m² とした燃料ガスの流量が多い条件でも、水と燃料ガスは均等 に混合でき、安定した発電ができた。

なお、水供給部を構成する水供給溝28に配置した多孔質体50の平均気孔径を20μmのカーボン不織布とし、発電中のトラブルを想定して水の供給を停止した。この時、燃料ガスマニホールド20内の燃料ガス圧力は水マニホールド21のそれよりも5kPa高くなったが、水マニホールド21への燃料ガスの漏れ込みはなかった。

図9は、第3の実施形態の変形例を説明するための図であり、図9Aはセパレータ8の概略を示す上面図であり、図9Bは図9AのAーB線に沿って切断し矢印方向に見た断面図である。本実施形態は、図9に示すように、概略図6において、反応ガス供給セパレータ8に形成されている各隔壁29の相互間に、図7と同一の圧損要素としての多孔質体50を設けたものであり、これ以外の点は図6と同一である。図9のように構成しても、図8と同様な作用効果が得られる。

<第4の実施形態>

図10は、本発明の第4の実施形態を説明するための図であり、図10Aはセパレータ8の概略を示す上面図であり、図10Bは図10AのA-B線に沿って切断し矢印方向に見た断面図である。本実施形態は、概略図2において、反応ガス供給セパレータ8に形成されている複数の突起25を形成せず、この部分まで複数の燃料ガス供給溝22をそれぞれ延長し、反応ガス供給セパレータ8であって燃料ガス供給溝2

2が形成されている面に存在する燃料ガス導入部23とは反対側の裏面に、水マニホールド21と連通する水供給溝28を形成し、燃料ガス導入部23と水供給溝28をつなぐ複数の連通孔31を等間隔に形成したものである。各連通孔31は、各燃料ガス供給溝22に対応して1ヶずつ形成し、この場合各連通孔31の直径を例えば0.5mmとしたものである。これ以外の構成は、図2と同一である。

このように第4の実施形態では、各燃料ガス供給溝22に水を直接供給することにより、燃料ガスと均等に混合でき、燃料ガス供給溝22に混合流をセパレータ面内で均等に供給することができた。

また、負荷電流密度を1A/cm²とした燃料ガスの流量が多い条件でも、水と燃料ガスが均等に混合され、安定した発電が可能であった。なお、連通孔31の数および直径は実施形態に限らず任意に設定しても同様の効果が得られる。連通孔31の孔径は、小さければ小さい方がよいが、実際には燃料ガス供給溝22の製造技術に左右される。

<第5の実施形態>

図11は、本発明の第5の実施形態を説明するための図であり、図11Aはセパレータ8の概略を示す上面図であり、図11Bは図11AのA-B線に沿って切断し矢印方向に見た断面図である。本実施形態は、図10において、反応ガス供給セパレータ8であって燃料ガス供給溝22が形成されている面とは反対側の裏面に形成した水供給溝28に、各連通孔31を覆うように、図7と同一の圧損要素としての多孔質

体50を設けたものである。

この場合、連通孔31の直径を9mmとし、多孔質体50 としては、平均気孔径が10μm、厚さ50μmのカーボン 製不織布を使用した。

このように構成することにより本実施形態では、燃料ガスと均等に混合でき、燃料ガス供給溝に混合流を均等に供給することができた。また、負荷電流密度を1A/cm²とした燃料ガスの流量が多い条件でも、安定した発電が可能であった。次に、発電中のトラブルを想定して燃料ガスマニホールド20内の燃料ガス圧力を水マニホールド21のそれよりも8kPa高く設定したが、水マニホールド21への燃料ガスの漏れ込みはなかった。

以上説明した本発明によれば、次のような作用効果が得られる。すなわち、複数の単位電池を積層してなる燃料電池本体において、燃料ガス供給路の燃料ガス部に液状の水を供給する水供給手段、又は燃料ガス供給路であって燃料がみの導入部に液状の水を供給することにより、固体高分子膜を加湿するとともに反応ガス供給セパレータに対して潜熱冷却を行う加湿潜熱冷却手段を設けることにより、反応ガスを予め加湿しないでも固体高分子膜の乾燥を防止でき、高負なる、や大きな負荷変動時においても安定した発電が可能となる。とれ以外に、以下の効果が得られる。

(1) 燃料電池本体を冷却するために従来必要であった冷却 水供給セパレータを必要としないため、燃料電池本体をコン パクト化、軽量化できる。

- (2) 燃料電池本体を冷却するために、従来必要であった大きな冷却水循環システム必要としないため、水供給システムをコンパクト化、軽量化できる。
- (3)酸化剤ガスを予め加湿しないでも固体高分子膜は乾燥せず、従来必要であった大きな加湿器を必要としない。

又、水供給手段を反応ガス供給セパレータの少なくとも片面を加工して設けたことにより、燃料電池本体のコンパクト 化/軽量化ができ、製造コストも大幅に低減できる。

さらに、燃料極の触媒層と燃料ガス供給溝の間に撥水層を構成する多孔質体を設けたことにより、燃料極に過剰の水を供給しても燃料極でのフラッディング現象による電圧低下は起こらず、供給水量許容幅が広がった。また、適切な供給水量を発電電圧V(V/セル)および負荷電流I(A)から演算し、電池本体に供給する水量を制御することにより、大きな負荷変動時においても供給水の過不足が生じず、安定した運転が可能となる。

以上述べたことから本発明によれば、簡素化、コンパクト化/軽量化、高信頼性化、さらにはそれらによる低コスト化が可能な固体高分子型燃料電池および固体高分子型燃料電池システムを提供できる。

<変形例>

本発明は、前述した実施形態に限定されず、次のように変形して実施できる。前述の実施形態の反応ガス供給セパレータ8は、燃料ガス供給溝22を配置した面と反対の面に酸化

剤ガス供給溝49を形成した一体ものについて説明したが、これを燃料ガス供給溝22を形成した部分と、酸化剤ガス供給溝49を形成した部分を夫々準備し、これらを接合又は単に当接するようにしてもよい。また、反応ガス供給セパレータ8は、単位電池相互間に、配設するものは、図1に示すように燃料ガス供給溝22と酸化剤ガス供給溝49を形成したものであるが、単位電池の容器側のように端部に配設する反応ガス供給セパレータは、燃料ガス供給溝のみを形成したもの又は酸化剤ガス供給溝のみを形成したものいずれかを使用することは言うまでもない。

さらに、前述の実施形態の反応セパレータ8に設けた燃料ガス供給溝22、酸化剤ガス供給溝49は、いずれも孔、孔に圧損要素としての多孔質体を設けたもの、管、管内に圧損要素としての多孔質体を設けた燃料ガス供給路、酸化剤ガス供給路のいずれかの構成であってもよい。

また、前述の実施形態では、燃料ガス供給溝であって燃料ガス導入部に水を供給するするものを例にあげて説明したが、該水の供給する位置は、燃料ガス供給路を構成する例えば燃料ガス供給溝の途中であってもよい。

産業上の利用可能性

本発明の固体高分子型燃料電池本体及び固体高分子型燃料電池発電システムは、各種電源例えば車載用電源や定置用電源としても利用が可能である。

請求の範囲

1.固体高分子型燃料電池において、

固体高分子膜(1)の両面に触媒層(42)を有する燃料極(2)と触媒層(44)を有する酸化剤極(3)をそれぞれ配置した複数の単位電池(4)と、

前記各単位電池(4)の前記燃料極(2)に燃料ガスを供給するための燃料ガス供給路を設けた反応ガス供給セパレータ(8)と、

前記燃料極(2)の触媒層(42)と前記反応ガス供給セパレータ(8)の間に設けた導電性多孔質性の撥水層と、

前記燃料ガス供給路に液状の水を供給する水供給手段と、を具備したことを特徴とする固体高分子型燃料電池。

2. 固体高分子型燃料電池において、

固体高分子膜(1)の両面に触媒層(42)を有する燃料極(2)と触媒層(44)を有する酸化剤極(3)をそれぞれ配置した複数の単位電池(4)と、

前記各単位電池 (4) の前記燃料極 (2) に燃料ガスを供給するための燃料ガス供給路を設けた反応ガス供給セパレータ (8) と、

前記燃料極の触媒層(42)と前記反応ガス供給セパレータ(8)の間に設けた導電性多孔質性の接水層と、

前記燃料ガス供給路に液状の水を供給することにより、前記固体高分子膜(1)を加湿するとともに前記反応ガス供給セパレータ(8)に対して潜熱冷却を行う加湿潜熱冷却手段と、

を具備したことを特徴とする固体高分子型燃料電池。

- 3. 前記燃料ガス供給路に供給する水の量を制御する水量制御手段を、さらに具備したことを特徴とする請求の範囲1又は2記載の固体高分子型燃料電池。
- 4. 前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータ(8)を貫通するように形成した水マニホールド(21)と、該反応ガス供給セパレータ(8)に設けた燃料ガス供給路の燃料ガス導入部(23)に形成した燃料ガスと水を混合するヘッダ(26)と、前記反応ガス供給セパレータ(8)であって前記ヘッダ(26)と前記水マニホールド(21)をつなぐ水供給路部とで構成したことを特徴とする請求の範囲1~3のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。
- 5.前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータ(8)を貫通するように形成した水マニホールド(21)と、該反応ガス供給セパレータ(8)に設けた燃料ガス供給路の燃料ガス導入部(23)に形成した燃料ガスと水を混合するヘッダ(26)と、前記反応ガス供給セパレータ(8)であって前記ヘッダ(26)に配設した圧損要素としての多孔質体(50)と、前記反応ガス供給セパレータ(8)であって前記ヘッダ(26)ガス供給セパレータ(8)であって前記ヘッダ(26)がス供給セパレータ(8)であって前記ヘッダ(26)と応ガス供給セパレータ(8)であって前記へッダ(26)と応ガスでは、カールド(21)をつなぐ水供給路部とで構成したことを特徴とする請求の範囲1~3のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。
 - 6. 前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なく

とも前記反応ガス供給セパレータ(8)を貫通するように形成した水マニホールド(21)と、該反応ガス供給セパレータ(8)の片面に形成した燃料ガス供給路と、該反応ガス供給セパレータ(8)に設けた燃料ガス供給路の燃料ガス導入部(23)に形成した燃料ガスと水を混合するヘッダ(26)と、前記反応ガス供給セパレータ(8)であって前記へッダ(26)と前記水マニホールドをつなぐ水供給路と、前記反応ガス供給セパレータであって前記水供給路に配設した圧損要素としての多孔質体(50)と、で構成したことを特徴とする請求の範囲1~3のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。

7. 前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータ(8)を貫通するように形成した水マニホールド(21)と、該反応ガス供給セパレータ(8)の片面に形成した燃料ガス供給路と、前記反応ガス供給と、前記燃料ガス供給路が形成されている面に存在する燃料ガス導入部(23)とは反対側の裏面に形成し、前記水マニホールド(21)と連通する水供給路と、前記反応ガス供給セパレータ(8)であって前記燃料ガス導入部(23)と前記水供給路をつなぐ連通孔(31)と、で構成したことを特徴とする請求の範囲1~3のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。

8. 前記水供給手段又は前記加湿潜熱冷却手段は、少なくとも前記反応ガス供給セパレータ(8)を貫通するように形成した水マニホールド(21)と、該反応ガス供給セパレー

タの片面に形成した燃料ガス供給路と、前記反応ガス供給セパレータ(8)であって前記燃料ガス供給路が形成されている面に存在する燃料ガス導入部(23)とは反対側の裏面に形成し、前記水マニホールド(21)と連通する水供給路と、前記反応ガス供給セパレータ(8)であって前記燃料ガス導入部(23)と前記水供給路をつなぐ連通孔(31)と、前記連通孔(31)を覆うように配置した圧損要素としての多孔質体(50)と、で構成したことを特徴とする請求の範囲1~3のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。

- 9. 前記多孔質体 (50) の平均気孔径は20μm以下 (0を含まず) であることを特徴とする請求の範囲5、6、8のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。
 - 10. 固体高分子型燃料電池発電システムにおいて、

固体高分子膜(1)の両面に触媒層(42)を有する燃料極(2)と触媒層(44)を有する酸化剤極(3)をそれぞれ配置した複数の単位電池(4)と、

前記各単位電池(4)の前記燃料極(2)に燃料ガスを供給するための燃料ガス供給路を設けた反応ガス供給セパレータ(8)と、

前記燃料極(2)の触媒層(42)と前記反応ガス供給セパレータ(8)の間に設けた導電性多孔質性の撥水層と、

前記燃料ガス供給路に液状の水を供給する水供給手段又は 前記燃料ガス供給路に液状の水を供給することにより、前記 固体高分子膜(1)を加湿するとともに前記反応ガス供給セ パレータ(8)に対して潜熱冷却を行う加湿潜熱冷却手段と 前記単位電池(4)より排出される燃料排ガスおよび酸化剤排ガスからの水の熱を回収する熱回収手段と、

前記熱回収手段で回収された回収水を供給する回収水供給手段と、

前記回収水供給手段からの供給水量を制御する供給水量制御手段と、

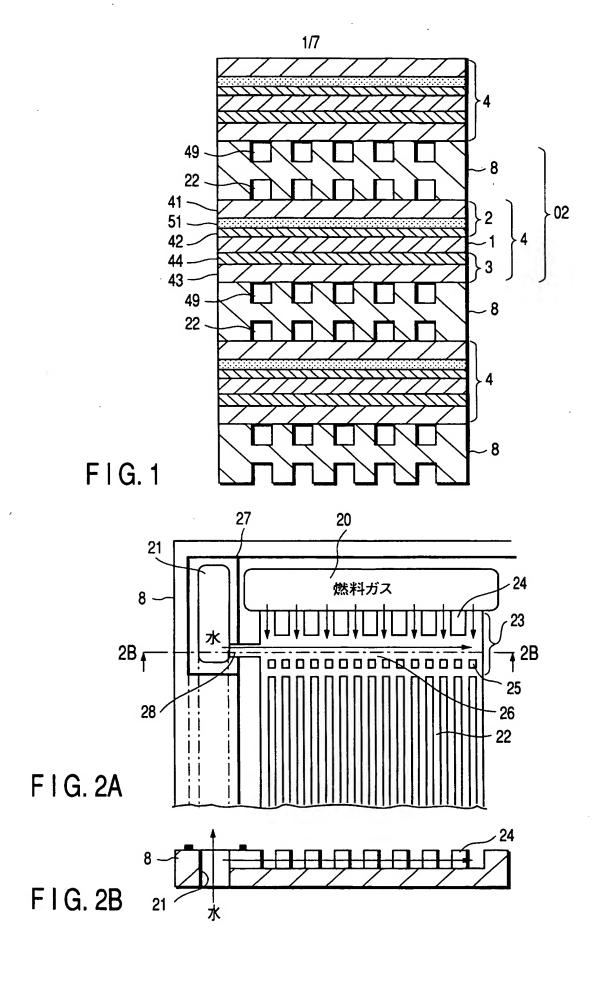
を具備したことを特徴とする固体高分子型燃料電池発電システム。

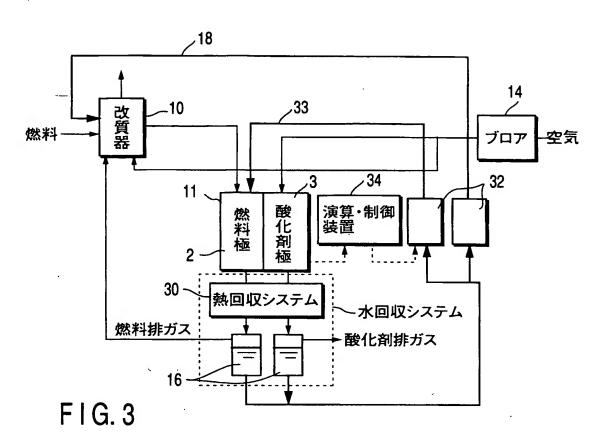
11.前記供給水量を制御する供給水量制御手段は、各単位電池(4)の発電電圧および負荷電流から給水量を演算する演算手段と、前記演算手段の演算結果の信号により回収水の供給水量を制御する定量ポンプ(32)と、で構成したことを特徴とする請求の範囲10に記載の固体高分子型燃料電池発電システム。

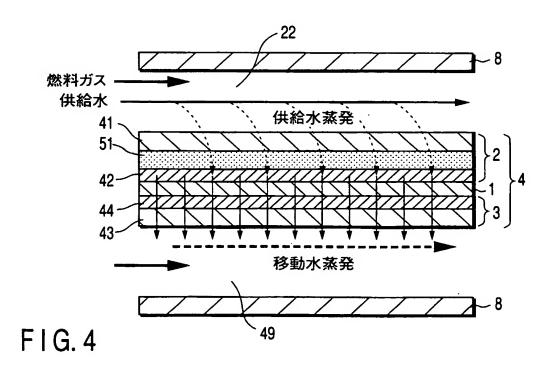
12.前記演算手段は、発電電圧V(V/セル)、負荷電流I(A)、積層電池枚数C(セル)、水の蒸発潜熱h(J/g)、電池反応により水蒸気が発生するときの生成エンタルピー変化ΔH(J/mol)、ファラデー定数F(C/mol)としたとき、(1)式に基づき、供給水量W(g/min)を求めるものであり、前記供給水量制御手段は該供給水量の20倍量までの任意の水量を、前記燃料ガス供給路に供給制御を行うことを特徴とする請求の範囲10又は11に記載の固体高分子型燃料電池発電システム。

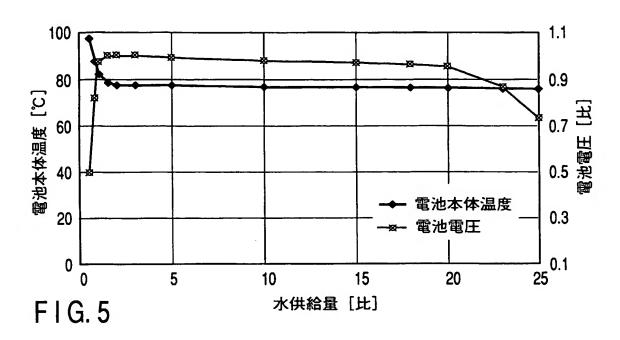
 $W = 30 \cdot I \cdot C \cdot (\Delta H / F - 2 V) / h$ (1) 式

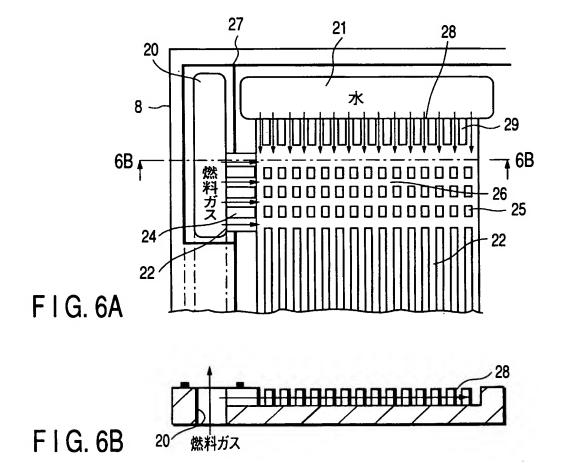
WO 02/103829 PCT/JP01/05152



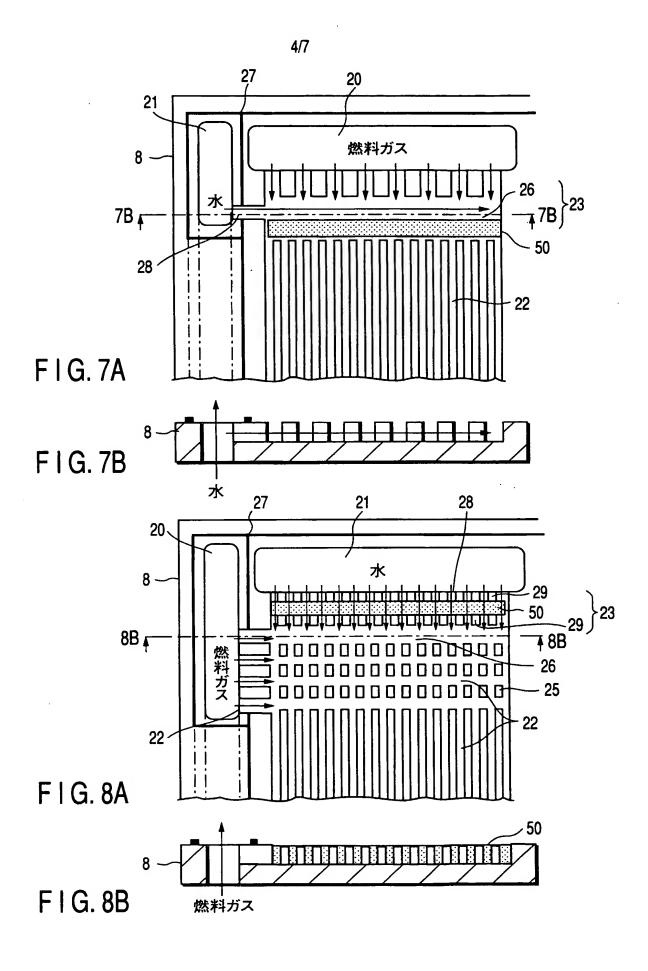




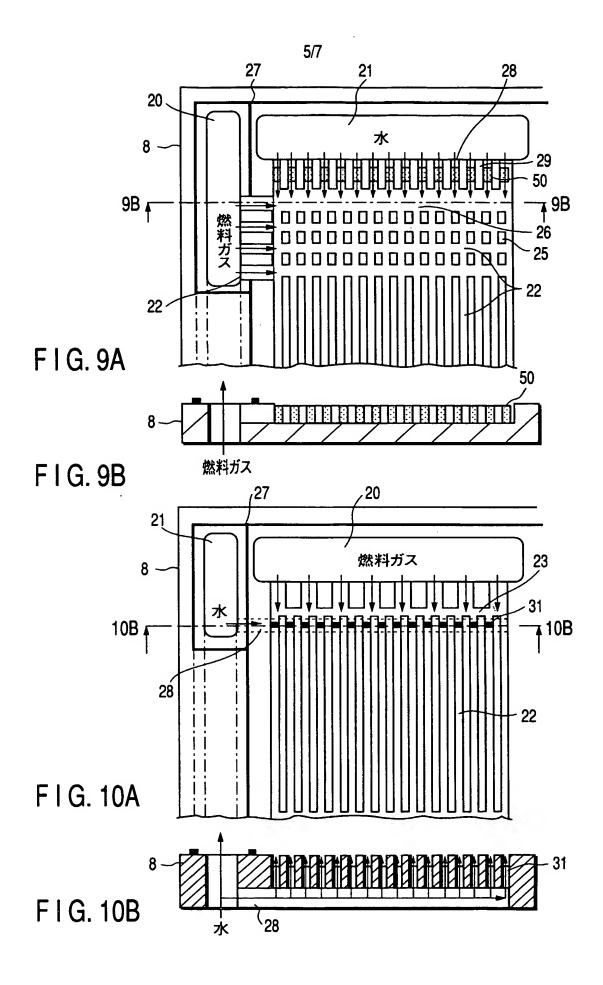


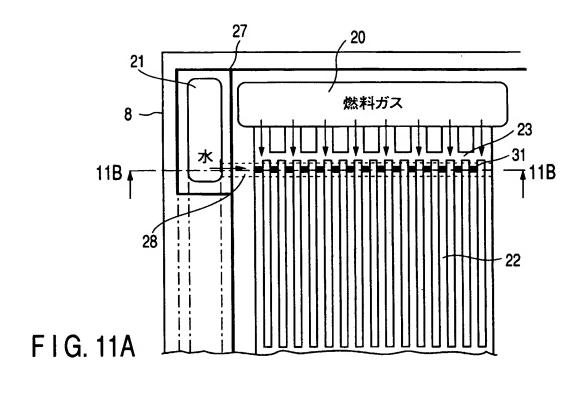


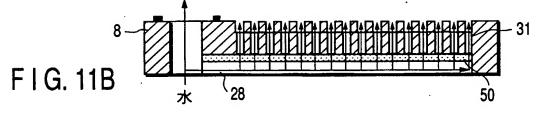
WO 02/103829 PCT/JP01/05152

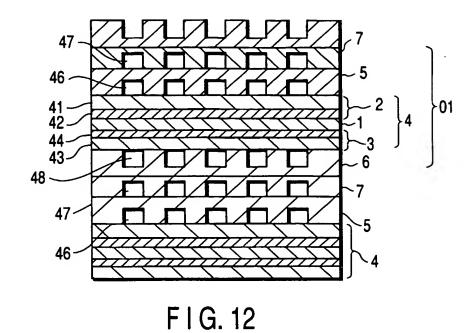


WO 02/103829









18 燃料排ガス 12 14 改質器 -10 燃料 加湿器 ブロア -空気 11. 13 3 17 酸化剤極 燃料極 冷却板 水供給 システム 冷却水ライン 15 · 水回収システム 燃料排ガス 酸化剤排ガス 16-

F I G. 13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/05152

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ H01M8/04, H01M8/02					
	International Patent Classification (IPC) or to both nat	ional classification and IPC			
	SEARCHED 6.11				
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ H01M8/04, H01M8/02					
Jits Koka	Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)					
C. DOCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where app	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
X Y	JP 2000-243419 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 08 September, 2000 (08.09.00), Claims; page 5, left column, lines 19 to 30; page 7, left column, line 23 to right column, line 49 (Family: none)		1-4 4-12		
X Y	DE 19838814 A1 (Fuji Electric C 04 March, 1999 (04.03.99), Claims & JP 11-135133 A Claims	co., Ltd.),	- 1-3 4-12		
Y	JP 11-73979 A (Fuji Electric Co 16 March, 1999 (16.03.99), Claims; page 3, right column, (Family: none)		5-6,8-9		
Y	JP 7-220746 A (Mitsubishi Heavy 18 August, 1995 (18.08.95), Claims; Fig. 1 (Family: none)	Industries, Ltd.),	7-9		
□ Further □	r documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published after the international filing priority date and not in conflict with the application understand the principle or theory underlying the inventors document of particular relevance; the claimed inventors step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed inventors are provided to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed inventors are provided to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed inventors are provided to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed inventors are provided to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed inventors are provided to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed inventors are provided to involve an inventor are provided to involve an inventor are provided to involve and provided to involve and provided to involve and provided to			ne application but cited to erlying the invention claimed invention cannot be red to involve an inventive claimed invention cannot be by when the document is documents, such a skilled in the art		
than the priority date claimed					
Date of the actual completion of the international search 11 September, 2001 (11.09.01) Date of mailing of the international search report 25 September, 2001 (25.09.01)					
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer			
Facsimile No.		Telephone No.			

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/05152

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relev	ant passages	Relevant to claim No.		
Y	EP 1061600 A2 (Atecs Mannesmann AG), 09 June, 2000 (09.06.00), Claims & JP 2001-15139 A Claims		10-12		
Y	DE 10007973 Al (Toyota Jidosha Kabushiki Ka 21 September, 2000 (21.09.00), Claims & JP 2000-243418 A Claims	isha),	11-12		
		1	·		
	·				

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))					
Int.	C1' H01M8/04, H01M8/0	0 2			
B. 調査を行った分野					
	る。 最小限資料(国際特許分類(IPC))				
			Ì		
Int.	Cl' H01M8/04, H01M8/0				
		•			
	トの資料で調査を行った分野に含まれるもの ミ用新案公報 1926-1996年				
日本国际	ミ用新案公報 1926-1996年 公開実用新案公報 1971-2001年		·		
日本国	登録実用新案公報 1994-2001年				
日本国家	実用新案登録公報 1996-2001年				
国際調査で使用	用した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)			
<u> </u>					
C. 関連する	ると認められる文献 T		関連する		
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	きは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号		
	JP 2000-243419 A	(三洋電機株式会社)			
X	8. 9月. 2000 (08. 09. 0		1-4		
Y	特許請求の範囲,第5頁左欄19-3	30行,第7頁左欄23行一右	4-12		
	欄49行(ファミリーなし)				
·					
	DE 19838814 A1 (Fuj		1-3		
X	4.3月.1999(04.03.5 特許請求の範囲&JP 11-135		1-3 4-12		
Y	特計請求の範囲な」と「1-13と	7 1 3 3 A 位即的公司	4 12		
			<u> </u>		
X C欄の続	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。		
		の日の後に公事された立静			
	のカテゴリー 連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す	の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表	された文献であって		
もの		出願と矛盾するものではなく、			
	願日前の出願または特許であるが、国際出願日	の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、	火がかねのひを照		
	公表されたもの 主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行	「X」特に関連のある文献であって、 の新規性又は進歩性がないと考			
	くは他の特別な理由を確立するために引用する	「Y」特に関連のある文献であって、	当該文献と他の1以		
	理由を付す)	上の文献との、当業者にとって			
	「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献 よって進歩性がないと考えられるもの 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 「&」同一パテントファミリー文献				
国際調査を完了した日 11.09.01 国際調査報告の発送日 25.09.01					
国際調査機関の名称及びあて先		特許庁審査官(権限のある職員)	4X 9062		
日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915		原賢一	,		
東京都千代田区霞が関三丁目 4番 3 号 電話番号 03-3581-1101 内線 347			内線 3477		
郵便番号100-8915			′ 内線 3477		
NISOTAL LIBERTAL INC. A CONTROL OF THE CONTROL OF T					

C(続き).	関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
Y	JP 11-73979 A (富士電機株式会社) 16.3月.1999 (16.03.99), 特許請求の範囲,第3頁右欄35-48行,図1 (ファミリーなし)	5-6, 8-9	
Y	JP 7-220746 A (三菱重工業株式会社) 18.8月.1995 (18.08.95), 特許請求の範囲,図1 (ファミリーなし)	7-9	
Y	EP 1061600 A2 (Atecs Mannesmann AG) 9.6月.2000 (09.06.00), 特許請求の範囲, & JP 2001-15139 A 特許請求の 範囲	10-12	
Y	DE 10007973 A1 (Toyota Jidosha Kabushiki Kaisha) 21.9月.2000(21.09.00), 特許請求の範囲&JP 2000-243418 A 特許請求の 範囲	11-12	